

## TENT COOPERATION TREATY

PCT

## NOTIFICATION OF ELECTION

(PCT Rule 61.2)

From the INTERNATIONAL BUREAU

To:

Assistant Commissioner for Patents  
United States Patent and Trademark  
Office  
Box PCT  
Washington, D.C.20231  
ETATS-UNIS D'AMERIQUE

in its capacity as elected Office

Date of mailing (day/month/year)  
27 June 2000 (27.06.00)

International application No.  
PCT/EP99/07654

Applicant's or agent's file reference  
LeA 32990-PC

International filing date (day/month/year)  
12 October 1999 (12.10.99)

Priority date (day/month/year)  
22 October 1998 (22.10.98)

Applicant

HEUSER, Jürgen et al

1. The designated Office is hereby notified of its election made:



in the demand filed with the International Preliminary Examining Authority on:

18 May 2000 (18.05.00)



in a notice effecting later election filed with the International Bureau on:

2. The election ☒ was

was not

made before the expiration of 19 months from the priority date or, where Rule 32 applies, within the time limit under Rule 32.2(b).

The International Bureau of WIPO  
34, chemin des Colombettes  
1211 Geneva 20, Switzerland

Facsimile No.: (41-22) 740.14.35

Authorized officer

Olivia RANAIVOJAONA

Telephone No.: (41-22) 338.83.38

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No.

PCT/EP 99/07654

## A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

IPC 7 C01B31/28 C08G64/22 C08G63/64

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

IPC 7 C01B

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

| Category * | Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages   | Relevant to claim No. |
|------------|--|-----------------------|
| X          | WO 97 30932 A (E.I. DU PONT DE NEMOURS AND COMPANY) 28 August 1997 (1997-08-28)<br>page 3, line 25 - line 34<br>page 1, line 4 - line 7<br>column 5; table 1 | 1                     |
| A          |  | 2,6                   |
| X          | EP 0 796 819 A (IDEMITSU PETROCHEMICAL CO) 24 September 1997 (1997-09-24)<br>claims 1-4<br>table 2   | 1,6                   |
| A          |  | 2                     |
|            | -/-  |                       |

☒ Further documents are listed in the continuation of box C.

☒ Patent family members are listed in annex.

### \* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier document but published on or after the international filing date

"I" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

17 December 1999

Date of mailing of the international search report

11/01/2000

Name and mailing address of the ISA

European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2  
NL - 2280 HV Rijswijk  
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,  
Fax (+31-70) 340-3016

Authorized officer

Rigondaud, B

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Int. Application No  
PCT/EP 99/07654

**C. (Continuation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT**

| Category * | Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages   | Relevant to claim No. |
|------------|--|-----------------------|
| X          | PATENT ABSTRACTS OF JAPAN<br>vol. 1997, no. 07,<br>31 July 1997 (1997-07-31)<br>& JP 09 059012 A (MITSUBISHI GAS CHEM CO<br>INC), 4 March 1997 (1997-03-04)<br>abstract  | 1,6                   |
| A          | —  | 2,5                   |
| X          | DATABASE WPI<br>Section Ch, Week 199543<br>Derwent Publications Ltd., London, GB;<br>Class A23, AN 1995-332595<br>XP002125361<br>& JP 07 228679 A (MITSUI TOATSU CHEM INC),<br>29 August 1995 (1995-08-29)<br>abstract | 1,6                   |
| A          | —  | 2                     |
| X          | EP 0 251 586 A (MITSUBISHI CHEM IND)<br>7 January 1988 (1988-01-07)<br>page 6; table 1<br>page 8; table 2  | 1,6                   |
| X          | WO 98 28227 A (E.I. DU PONT DE NEMOURS AND<br>COMPANY) 2 July 1998 (1998-07-02)<br>the whole document  | 1                     |
| A          | —  | 2,6                   |
| X          | WO 98 00364 A (E.I. DU PONT DE NEMOURS AND<br>COMPANY) 8 January 1998 (1998-01-08)<br>page 4, line 1   | 1                     |
| A          | —  | 2,6                   |
| A          | EP 0 846 713 A (MITSUBISHI CHEM CORP)<br>10 June 1998 (1998-06-10)<br>claims 5-7<br>page 4, line 1 - line 38   | 1,2,6                 |
| A          | DE 33 27 274 A (BAYER AG)<br>7 February 1985 (1985-02-07)<br>claim 1<br>page 12, line 1-5<br>page 16 -page 17  | 1,2,5                 |
| A          | GB 2 032 406 A (LUMMUS CO)<br>8 May 1980 (1980-05-08)<br>claims 1-13   | 1,2                   |
|            | -/-  |                       |

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Int. Application No

PCT/EP 99/07654

## C. (Continuation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

| Category * | Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages  | Relevant to claim No. |
|------------|---|-----------------------|
| A          | <p>DATABASE WPI<br/> Section Ch, Week 199008<br/> Derwent Publications Ltd., London, GB;<br/> Class A41, AN 1990-054036<br/> XP002022018<br/> &amp; JP 02 006307 A (IDEMITSU PETROCHEM CO),<br/> 10 January 1990 (1990-01-10)<br/> abstract</p> | 1,2                   |
| A          | <p>DATABASE WPI<br/> Section Ch, Week 199509<br/> Derwent Publications Ltd., London, GB;<br/> Class A17, AN 1995-063680<br/> XP002125362<br/> &amp; JP 06 340408 A (TEIJIN KASEI LTD),<br/> 13 December 1994 (1994-12-13)<br/> abstract</p>     | 1,6                   |

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

Int. l. Application No

PCT/EP 99/07654

| Patent document<br>cited in search report |   | Publication<br>date | Patent family<br>member(s)  | Publication<br>date  |
|---|---|---------------------|---|--|
| WO 9730932                                | A | 28-08-1997          | AU 7551296 A<br>BR 9612505 A<br>CN 1209109 A<br>EP 0881986 A  | 10-09-1997<br>20-07-1999<br>24-02-1999<br>09-12-1998   |
| EP 0796819                                | A | 24-09-1997          | JP 8157206 A<br>BR 9509842 A<br>WO 9616898 A  | 18-06-1996<br>23-12-1997<br>06-06-1996   |
| JP 09059012                               | A | 04-03-1997          | NONE  |  |
| JP 7228679                                | A | 29-08-1995          | NONE  |  |
| EP 0251586                                | A | 07-01-1988          | JP 2016848 C<br>JP 6076482 B<br>JP 62297320 A<br>JP 2018878 C<br>JP 6076483 B<br>JP 62297321 A<br>JP 1939535 C<br>JP 3020132 B<br>JP 63090536 A<br>BR 8703052 A<br>DE 3778591 A<br>US 4839458 A | 19-02-1996<br>28-09-1994<br>24-12-1987<br>19-02-1996<br>28-09-1994<br>24-12-1987<br>09-06-1995<br>18-03-1991<br>21-04-1988<br>08-03-1988<br>04-06-1992<br>13-06-1989 |
| WO 9828227                                | A | 02-07-1998          | EP 0952961 A  | 03-11-1999   |
| WO 9800364                                | A | 08-01-1998          | EP 0912443 A  | 06-05-1999   |
| EP 0846713                                | A | 10-06-1998          | JP 10226724 A<br>US 5986037 A   | 25-08-1998<br>16-11-1999   |
| DE 3327274                                | A | 07-02-1985          | BR 8403747 A<br>CA 1236115 A<br>EP 0134506 A<br>ES 534678 A<br>JP 1854162 C<br>JP 5067566 B<br>JP 60042214 A<br>MX 167421 B<br>US 4764308 A   | 02-07-1985<br>03-05-1988<br>20-03-1985<br>16-04-1985<br>07-07-1994<br>27-09-1993<br>06-03-1985<br>22-03-1993<br>16-08-1988   |
| GB 2032406                                | A | 08-05-1980          | US 4346047 A<br>IE 48558 B  | 24-08-1982<br>06-03-1985   |
| JP 2006307                                | A | 10-01-1990          | JP 6029129 B  | 20-04-1994   |
| JP 6340408                                | A | 13-12-1994          | NONE  |  |

# VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS

## PCT

### INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

(Artikel 18 sowie Regeln 43 und 44 PCT)

|  |  |   |
|--|--|---|
| Aktenzeichen des Anmelders oder Anwalts<br><b>LeA 32990-PC</b> | <b>WEITERES VORGEHEN</b> siehe Mitteilung über die Übermittlung des internationalen Recherchenberichts (Formblatt PCT/ISA/220) sowie, soweit zutreffend, nachstehender Punkt 5 |   |
| Internationales Aktenzeichen<br><b>PCT/EP 99/07654</b>         | Internationales Anmeldedatum<br>(Tag/Monat/Jahr)<br><b>12/10/1999</b>  | (Frühestes) Prioritätsdatum (Tag/Monat/Jahr)<br><b>22/10/1998</b> |
| Anmelder<br><b>BAYER AKTIENGESELLSCHAFT et al.</b>             |  |   |

Dieser internationale Recherchenbericht wurde von der Internationalen Recherchenbehörde erstellt und wird dem Anmelder gemäß Artikel 18 übermittelt. Eine Kopie wird dem Internationalen Büro übermittelt.

Dieser internationale Recherchenbericht umfaßt insgesamt 4 Blätter.

☒ Darüber hinaus liegt ihm jeweils eine Kopie der in diesem Bericht genannten Unterlagen zum Stand der Technik bei.

#### 1. Grundlage des Berichts

- a. Hinsichtlich der **Sprache** ist die internationale Recherche auf der Grundlage der internationalen Anmeldung in der Sprache durchgeführt worden, in der sie eingereicht wurde, sofern unter diesem Punkt nichts anderes angegeben ist.

☐ Die internationale Recherche ist auf der Grundlage einer bei der Behörde eingereichten Übersetzung der internationalen Anmeldung (Regel 23.1 b)) durchgeführt worden.

- b. Hinsichtlich der in der internationalen Anmeldung offenbarten **Nucleotid- und/oder Aminosäuresequenz** ist die internationale Recherche auf der Grundlage des Sequenzprotokolls durchgeführt worden, das

☐ in der internationalen Anmeldung in Schriftlicher Form enthalten ist.

☐ zusammen mit der internationalen Anmeldung in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.

☐ bei der Behörde nachträglich in schriftlicher Form eingereicht worden ist.

☐ bei der Behörde nachträglich in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.

☐ Die Erklärung, daß das nachträglich eingereichte schriftliche Sequenzprotokoll nicht über den Offenbarungsgehalt der internationalen Anmeldung im Anmeldezeitpunkt hinausgeht, wurde vorgelegt.

☐ Die Erklärung, daß die in computerlesbarer Form erfaßten Informationen dem schriftlichen Sequenzprotokoll entsprechen, wurde vorgelegt.

2. ☐ Bestimmte Ansprüche haben sich als nicht recherchierbar erwiesen (siehe Feld I).

3. ☐ Mangelnde Einheitlichkeit der Erfindung (siehe Feld II).

#### 4. Hinsichtlich der Bezeichnung der Erfindung

☒ wird der vom Anmelder eingereichte Wortlaut genehmigt.

☐ wurde der Wortlaut von der Behörde wie folgt festgesetzt:

#### 5. Hinsichtlich der Zusammenfassung

☒ wird der vom Anmelder eingereichte Wortlaut genehmigt.

☐ wurde der Wortlaut nach Regel 38.2b) in der in Feld III angegebenen Fassung von der Behörde festgesetzt. Der Anmelder kann der Behörde innerhalb eines Monats nach dem Datum der Absendung dieses internationalen Recherchenberichts eine Stellungnahme vorlegen.

#### 6. Folgende Abbildung der Zeichnungen ist mit der Zusammenfassung zu veröffentlichen: Abb. Nr. \_\_\_\_\_

☐ wie vom Anmelder vorgeschlagen

☐ weil der Anmelder selbst keine Abbildung vorgeschlagen hat.

☐ weil diese Abbildung die Erfindung besser kennzeichnet.

☒ keine der Abb.

**THIS PAGE BLANK (USPIC)**



## A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES

IPK 7 C01B31/28 C08G64/22 C08G63/64

Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

## B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierter Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)

IPK 7 C01B

Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

## C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

| Kategorie* | Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile  | Betr. Anspruch Nr. |
|------------|---|--------------------|
| X          | WO 97 30932 A (E.I. DU PONT DE NEMOURS AND COMPANY) 28. August 1997 (1997-08-28)<br>Seite 3, Zeile 25 - Zeile 34<br>Seite 1, Zeile 4 - Zeile 7<br>Spalte 5; Tabelle 1 | 1                  |
| A          | ---   | 2,6                |
| X          | EP 0 796 819 A (IDEMITSU PETROCHEMICAL CO)<br>24. September 1997 (1997-09-24)<br>Ansprüche 1-4<br>Tabelle 2   | 1,6                |
| A          | ---   | 2                  |
|            | ---<br>-/--   |                    |



Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen



Siehe Anhang Patentfamilie

\* Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen :

"A" Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist

"E" älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist

"L" Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)

"O" Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht

"P" Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist

"T" Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist

"X" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderscher Tätigkeit beruhend betrachtet werden

"Y" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderscher Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist

"&amp;" Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche

17. Dezember 1999

Absendedatum des internationalen Recherchenberichts

11/01/2000

Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde

Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2  
NL - 2280 HV Rijswijk  
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,  
Fax: (+31-70) 340-3016

Bevollmächtigter Bediensteter

Rigondaud, B

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

| C.(Fortsetzung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN |  |                    |
|--|--|--------------------|
| Kategorie°   | Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile   | Betr. Anspruch Nr. |
| X  | PATENT ABSTRACTS OF JAPAN<br>vol. 1997, no. 07,<br>31. Juli 1997 (1997-07-31)<br>& JP 09 059012 A (MITSUBISHI GAS CHEM CO<br>INC), 4. März 1997 (1997-03-04)<br>Zusammenfassung  | 1,6                |
| A  | ---  | 2,5                |
| X  | DATABASE WPI<br>Section Ch, Week 199543<br>Derwent Publications Ltd., London, GB;<br>Class A23, AN 1995-332595<br>XP002125361<br>& JP 07 228679 A (MITSUI TOATSU CHEM INC),<br>29. August 1995 (1995-08-29)<br>Zusammenfassung | 1,6                |
| A  | ---  | 2                  |
| X  | EP 0 251 586 A (MITSUBISHI CHEM IND)<br>7. Januar 1988 (1988-01-07)<br>Seite 6; Tabelle 1<br>Seite 8; Tabelle 2  | 1,6                |
| X  | ---  |                    |
| X  | WO 98 28227 A (E.I. DU PONT DE NEMOURS AND<br>COMPANY) 2. Juli 1998 (1998-07-02)<br>das ganze Dokument   | 1                  |
| A  | ---  | 2,6                |
| X  | WO 98 00364 A (E.I. DU PONT DE NEMOURS AND<br>COMPANY) 8. Januar 1998 (1998-01-08)<br>Seite 4, Zeile 1   | 1                  |
| A  | ---  | 2,6                |
| A  | EP 0 846 713 A (MITSUBISHI CHEM CORP)<br>10. Juni 1998 (1998-06-10)<br>Ansprüche 5-7<br>Seite 4, Zeile 1 - Zeile 38  | 1,2,6              |
| A  | ---  |                    |
| A  | DE 33 27 274 A (BAYER AG)<br>7. Februar 1985 (1985-02-07)<br>Anspruch 1<br>Seite 12, Zeile 1-5<br>Seite 16 -Seite 17   | 1,2,5              |
| A  | ---  |                    |
| A  | GB 2 032 406 A (LUMMUS CO)<br>8. Mai 1980 (1980-05-08)<br>Ansprüche 1-13   | 1,2                |
|  | ---  |                    |
|  | -/--   |                    |

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

| C.(Fortsetzung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN |  |                    |
|--|--|--------------------|
| Kategorie°   | Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile   | Betr. Anspruch Nr. |
| A  | DATABASE WPI<br>Section Ch, Week 199008<br>Derwent Publications Ltd., London, GB;<br>Class A41, AN 1990-054036<br>XP002022018<br>& JP 02 006307 A (IDEMITSU PETROCHEM CO),<br>10. Januar 1990 (1990-01-10)<br>Zusammenfassung<br>--- | 1,2                |
| A  | DATABASE WPI<br>Section Ch, Week 199509<br>Derwent Publications Ltd., London, GB;<br>Class A17, AN 1995-063680<br>XP002125362<br>& JP 06 340408 A (TEIJIN KASEI LTD),<br>13. Dezember 1994 (1994-12-13)<br>Zusammenfassung<br>-----  | 1,6                |

**THIS PAGE BLANK (USP 10)**

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No

PCT/EP 99/07654

| Patent document<br>cited in search report |   | Publication<br>date | Patent family<br>member(s)  | Publication<br>date  |
|---|---|---------------------|---|--|
| WO 9730932                                | A | 28-08-1997          | AU 7551296 A<br>BR 9612505 A<br>CN 1209109 A<br>EP 0881986 A  | 10-09-1997<br>20-07-1999<br>24-02-1999<br>09-12-1998   |
| EP 0796819                                | A | 24-09-1997          | JP 8157206 A<br>BR 9509842 A<br>WO 9616898 A  | 18-06-1996<br>23-12-1997<br>06-06-1996   |
| JP 09059012                               | A | 04-03-1997          | NONE  |  |
| JP 7228679                                | A | 29-08-1995          | NONE  |  |
| EP 0251586                                | A | 07-01-1988          | JP 2016848 C<br>JP 6076482 B<br>JP 62297320 A<br>JP 2018878 C<br>JP 6076483 B<br>JP 62297321 A<br>JP 1939535 C<br>JP 3020132 B<br>JP 63090536 A<br>BR 8703052 A<br>DE 3778591 A<br>US 4839458 A | 19-02-1996<br>28-09-1994<br>24-12-1987<br>19-02-1996<br>28-09-1994<br>24-12-1987<br>09-06-1995<br>18-03-1991<br>21-04-1988<br>08-03-1988<br>04-06-1992<br>13-06-1989 |
| WO 9828227                                | A | 02-07-1998          | EP 0952961 A  | 03-11-1999   |
| WO 9800364                                | A | 08-01-1998          | EP 0912443 A  | 06-05-1999   |
| EP 0846713                                | A | 10-06-1998          | JP 10226724 A<br>US 5986037 A   | 25-08-1998<br>16-11-1999   |
| DE 3327274                                | A | 07-02-1985          | BR 8403747 A<br>CA 1236115 A<br>EP 0134506 A<br>ES 534678 A<br>JP 1854162 C<br>JP 5067566 B<br>JP 60042214 A<br>MX 167421 B<br>US 4764308 A   | 02-07-1985<br>03-05-1988<br>20-03-1985<br>16-04-1985<br>07-07-1994<br>27-09-1993<br>06-03-1985<br>22-03-1993<br>16-08-1988   |
| GB 2032406                                | A | 08-05-1980          | US 4346047 A<br>IE 48558 B  | 24-08-1982<br>06-03-1985   |
| JP 2006307                                | A | 10-01-1990          | JP 6029129 B  | 20-04-1994   |
| JP 6340408                                | A | 13-12-1994          | NONE  |  |

**THIS PAGE BLANK (USP 107)**



# VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS

## PCT

REC'D 24 OCT 2000

WIPO

PCT

### INTERNATIONALER VORLÄUFIGER PRÜFUNGSBERICHT

(Artikel 36 und Regel 70 PCT)



|  |   |   |
|--|---|---|
| Aktenzeichen des Anmelders oder Anwalts<br>LeA 32990-PC                                      | <b>WEITERES VORGEHEN</b> siehe Mitteilung über die Übersendung des internationalen vorläufigen Prüfungsbericht (Formblatt PCT/IPEA/416) |   |
| Internationales Aktenzeichen<br>PCT/EP99/07654   | Internationales Anmeldedatum (Tag/Monat/Jahr)<br>12/10/1999   | Prioritätsdatum (Tag/Monat/Tag)<br>22/10/1998 |
| Internationale Patentklassifikation (IPK) oder nationale Klassifikation und IPK<br>C01B31/28 |   |   |
| Anmelder<br>BAYER AKTIENGESELLSCHAFT et al.  |   |   |

- Dieser internationale vorläufige Prüfungsbericht wurde von der mit der internationale vorläufigen Prüfung beauftragte Behörde erstellt und wird dem Anmelder gemäß Artikel 36 übermittelt.
- Dieser BERICHT umfaßt insgesamt 4 Blätter einschließlich dieses Deckblatts.  
  
☐ Außerdem liegen dem Bericht ANLAGEN bei; dabei handelt es sich um Blätter mit Beschreibungen, Ansprüchen und/oder Zeichnungen, die geändert wurden und diesem Bericht zugrunde liegen, und/oder Blätter mit vor dieser Behörde vorgenommenen Berichtigungen (siehe Regel 70.16 und Abschnitt 607 der Verwaltungsrichtlinien zum PCT).

Diese Anlagen umfassen insgesamt Blätter.

- Dieser Bericht enthält Angaben zu folgenden Punkten:

- I ☒ Grundlage des Berichts
- II ☐ Priorität
- III ☐ Keine Erstellung eines Gutachtens über Neuheit, erfinderische Tätigkeit und gewerbliche Anwendbarkeit
- IV ☐ Mangelnde Einheitlichkeit der Erfindung
- V ☒ Begründete Feststellung nach Artikel 35(2) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderische Tätigkeit und der gewerbliche Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung
- VI ☐ Bestimmte angeführte Unterlagen
- VII ☐ Bestimmte Mängel der internationalen Anmeldung
- VIII ☐ Bestimmte Bemerkungen zur internationalen Anmeldung

|  |  |
|--|--|
| Datum der Einreichung des Antrags<br><br>18/05/2000  | Datum der Fertigstellung dieses Berichts<br><br>20.10.2000   |
| Name und Postanschrift der mit der internationalen vorläufigen Prüfung beauftragten Behörde:<br><br> Europäisches Patentamt<br>D-80298 München<br>Tel. +49 89 2399 - 0 Tx: 523656 epmu d<br>Fax: +49 89 2399 - 4465 | Bevollmächtigter Bediensteter<br><br>Sala, P<br><br>Tel. Nr. +49 89 2399 8568<br><br> |

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

# INTERNATIONALER VORLÄUFIGER PRÜFUNGSBERICHT

Internationales Aktenzeichen PCT/EP99/07654

## I. Grundlage des Berichts

1. Dieser Bericht wurde erstellt auf der Grundlage (*Ersatzblätter, die dem Anmeldeamt auf eine Aufforderung nach Artikel 14 hin vorgelegt wurden, gelten im Rahmen dieses Berichts als "ursprünglich eingereicht" und sind ihm nicht beigelegt, weil sie keine Änderungen enthalten.*):

### Beschreibung, Seiten:

1-6 ursprüngliche Fassung

### Patentansprüche, Nr.:

1-6 ursprüngliche Fassung

2. Aufgrund der Änderungen sind folgende Unterlagen fortgefallen:

- ☐ Beschreibung,      Seiten:  
☐ Ansprüche,      Nr.:  
☐ Zeichnungen,      Blatt:

3. ☐ Dieser Bericht ist ohne Berücksichtigung (von einigen) der Änderungen erstellt worden, da diese aus den angegebenen Gründen nach Auffassung der Behörde über den Offenbarungsgehalt in der ursprünglich eingereichten Fassung hinausgehen (Regel 70.2(c)):

4. Etwaige zusätzliche Bemerkungen:

## V. Begründete Feststellung nach Artikel 35(2) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung

### 1. Feststellung

|                                |                 |     |
|--------------------------------|-----------------|-----|
| Neuheit (N)                    | Ja: Ansprüche   |     |
|                                | Nein: Ansprüche | 1,6 |
| Erfinderische Tätigkeit (ET)   | Ja: Ansprüche   |     |
|                                | Nein: Ansprüche | 2-5 |
| Gewerbliche Anwendbarkeit (GA) | Ja: Ansprüche   | 1-6 |
|                                | Nein: Ansprüche |     |

### 2. Unterlagen und Erklärungen

siehe Beiblatt

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

**Zu Punkt V**

**Begründete Feststellung nach Regel 66.2(a)(ii) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung**

**Anspruch 1:**

Aus den ersten sieben Dokumenten des internationalen Recherchenberichts ist Phosgen mit weniger als 150 ppm Tetrachlorokohlenstoff bekannt. Es wird besonders auf die im internationalen Recherchenbericht angegebenen Dokumentteile verwiesen. Der Gegenstand des Anspruch 1 ist somit nicht neu.

**Anspruch 6:**

Aus mehreren der obengenannten Dokumenten ist die Verwendung des Phosgens zur Herstellung von Polycarbonaten bekannt. Der Gegenstand des Anspruch 6 ist somit ebenfalls nicht neu.

**Ansprüche 2-5:**

Die Herstellung von Phosgen durch Umsetzung von Chlor mit CO an Aktivkohle bei leicht erhöhter Temperatur (40-100°C) ist aus DE-A-3327274 bekannt (siehe die Seite 3, in der dieses Dokument seinen eigenen Stand der Technik erwähnt). Aus D1=WO97/30932, Seite 3, Zeilen 18-25, sind auch Temperaturen in diesem Bereich bekannt (die konkret genannte Werte sind 40 und 50°C). Das Verfahren gemäß Anspruch 2 unterscheidet sich somit von diesem Stand der Technik lediglich dadurch, daß der Druck gegenüber dem atmosphärischen Druck leicht erhöht ist. Es ist nicht erkennbar, welche technische Effekte mit dieser leichten Erhöhung des Drucks verbunden sind (in den Beispielen ist die Rolle des Drucks unklar, weil die Temperatur des Vergleichsbeispiels nicht identisch mit der Temperatur der Beispiele 1 und 2 ist).

**Zu Punkt VIII**

**Bestimmte Bemerkungen zur internationalen Anmeldung**

Das Verfahren der Ansprüche wird durch die Temperatur und den Druck gekennzeichnet, die unmittelbar hinter dem Generator gemessen sind. Es ist nicht klar, ob die unmittelbar hinter einem Reaktor gemessenen Parameter eine

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

treue Wiedergabe der Umsetzungsparameter des Reaktors sind, und besonders ob dies bei allen Reaktorbauarten der Fall ist.

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**



## PATENT COOPERATION TREATY

## PCT

## INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

(PCT Article 36 and Rule 70)

|  |   |  |
|--|---|--|
| Applicant's or agent's file reference<br>LeA 32990-PC                                      | <b>FOR FURTHER ACTION</b> See Notification of Transmittal of International Preliminary Examination Report (Form PCT/IPEA/416) |  |
| International application No.<br>PCT/EP99/07654  | International filing date (day/month/year)<br>12 October 1999 (12.10.99)  | Priority date (day/month/year)<br>22 October 1998 (22.10.98) |
| International Patent Classification (IPC) or national classification and IPC<br>C01B 31/28 |   |  |
| Applicant<br>BAYER AKTIENGESELLSCHAFT  |   |  |

1. This international preliminary examination report has been prepared by this International Preliminary Examining Authority and is transmitted to the applicant according to Article 36.
2. This REPORT consists of a total of 4 sheets, including this cover sheet.

☒ This report is also accompanied by ANNEXES, i.e., sheets of the description, claims and/or drawings which have been amended and are the basis for this report and/or sheets containing rectifications made before this Authority (see Rule 70.16 and Section 607 of the Administrative Instructions under the PCT).

These annexes consist of a total of \_\_\_\_\_ sheets.

3. This report contains indications relating to the following items:

- I ☒ Basis of the report
- II ☐ Priority
- III ☐ Non-establishment of opinion with regard to novelty, inventive step and industrial applicability
- IV ☐ Lack of unity of invention
- V ☒ Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement
- VI ☐ Certain documents cited
- VII ☐ Certain defects in the international application
- VIII ☐ Certain observations on the international application

|  |   |
|--|---|
| Date of submission of the demand<br>18 May 2000 (18.05.00) | Date of completion of this report<br>20 October 2000 (20.10.2000) |
| Name and mailing address of the IPEA/EP                    | Authorized officer  |
| Facsimile No.  | Telephone No.   |

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

## INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.

PCT/EP99/07654

## I. Basis of the report

1. This report has been drawn on the basis of (*Replacement sheets which have been furnished to the receiving Office in response to an invitation under Article 14 are referred to in this report as "originally filed" and are not annexed to the report since they do not contain amendments.*):

☒ the international application as originally filed.

☐ the description, pages 1-6, as originally filed,  
pages \_\_\_\_\_, filed with the demand,  
pages \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_,  
pages \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_.

☐ the claims, Nos. 1-6, as originally filed,  
Nos. \_\_\_\_\_, as amended under Article 19,  
Nos. \_\_\_\_\_, filed with the demand,  
Nos. \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_,  
Nos. \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_.

☐ the drawings, sheets/fig \_\_\_\_\_, as originally filed,  
sheets/fig \_\_\_\_\_, filed with the demand,  
sheets/fig \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_,  
sheets/fig \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_.

2. The amendments have resulted in the cancellation of:

☐ the description, pages \_\_\_\_\_

☐ the claims, Nos. \_\_\_\_\_

☐ the drawings, sheets/fig \_\_\_\_\_

3. ☐ This report has been established as if (some of) the amendments had not been made, since they have been considered to go beyond the disclosure as filed, as indicated in the Supplemental Box (Rule 70.2(c)).

4. Additional observations, if necessary:

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

# INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.

PCT/EP 99/07654

## V. Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement

### 1. Statement

|                               |        |      |     |
|-------------------------------|--------|------|-----|
| Novelty (N)                   | Claims |      | YES |
|                               | Claims | 1, 6 | NO  |
| Inventive step (IS)           | Claims |      | YES |
|                               | Claims | 2-5  | NO  |
| Industrial applicability (IA) | Claims | 1-6  | YES |
|                               | Claims |      | NO  |

### 2. Citations and explanations

#### Claim 1:

The first seven documents listed in the international search report disclose phosgene with less than 150 ppm tetrachlorocarbon. Particular reference is made to the passages from those documents cited in the international search report. The subject matter of Claim 1 is therefore not novel.

#### Claim 6:

Several of the aforementioned documents disclose the use of phosgene for producing polycarbonates. Consequently, the subject matter of Claim 6 also lacks novelty.

#### Claims 2-5:

DE-A-33 27 274 (see page 3 on which said document refers to its own prior art) discloses the production of phosgene by reacting chlorine with CO in the presence of activated carbon at a slightly raised temperature (40-100°C). WO-A-97/30932 (D1), page 3, lines 18-25, also discloses temperatures in the same range (the specific values specified are 40 and 50°C). The method as per Claim 2 therefore

**THIS PAGE BLANK (USP 10)**

differs from this prior art merely in that the pressure is slightly higher than atmospheric pressure. It is not clear what technical effects are linked with this slight increase in pressure (in the examples, the role of the pressure is unclear, since the temperature in the comparative example is not identical to the temperature in Examples 1 and 2).

**THIS PAGE BLANK (b)(7)(C)**



**VIII. Certain observations on the international application**

The following observations on the clarity of the claims, description, and drawings or on the question whether the claims are fully supported by the description, are made:

The method defined in the claims is characterised by temperature and pressure, which are measured directly behind the generator. It is not clear whether the parameters measured directly behind a reactor provide a true reflection of the reaction parameters of the reactor and, in particular, whether this is the case for all types of reactor.

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

**PCT**WELTORGANISATION FÜR GEISTIGES EIGENTUM  
Internationales BüroINTERNATIONALE ANMELDUNG VERÖFFENTLICHT NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE  
INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS (PCT)

|   |           |  |
|---|-----------|--|
| <b>(51) Internationale Patentklassifikation <sup>7</sup> :</b><br><b>C01B 31/28, C08G 64/22, 63/64</b>  | <b>A1</b> | <b>(11) Internationale Veröffentlichungsnummer: WO 00/24672</b><br><br><b>(43) Internationales Veröffentlichungsdatum:</b> 4. Mai 2000 (04.05.00)  |
| <b>(21) Internationales Aktenzeichen:</b> PCT/EP99/07654<br><b>(22) Internationales Anmeldedatum:</b> 12. Oktober 1999 (12.10.99)<br><br><b>(30) Prioritätsdaten:</b><br>198 48 668.5      22. Oktober 1998 (22.10.98)      DE<br><br><b>(71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten ausser US):</b> BAYER AKTIENGESellschaft [DE/DE]; D-51368 Leverkusen (DE).<br><br><b>(72) Erfinder; und</b><br><b>(75) Erfinder/Anmelder (nur für US):</b> HEUSER, Jürgen [DE/DE]; Minkweg 29 a, D-47803 Krefeld (DE). KAUTH, Hermann [DE/DE]; Kolpingstrasse 34, D-47829 Krefeld (DE). KORDS, Christian [DE/DE]; Am Oberfeld 39, D-47829 Krefeld (DE).<br><br><b>(74) Gemeinsamer Vertreter:</b> BAYER AKTIENGESellschaft; D-51368 Leverkusen (DE).  |           | <b>(81) Bestimmungsstaaten:</b> AE, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, CA, CH, CN, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, EE, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, NO, NZ, PL, PT, RO, RU, SD, SE, SG, SI, SK, SL, TJ, TM, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VN, YU, ZA, ZW, ARIPO Patent (GH, GM, KE, LS, MW, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZW), eurasisches Patent (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), europäisches Patent (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE), OAPI Patent (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).<br><br><b>Veröffentlicht</b><br>Mit internationalem Recherchenbericht. |
| <b>(54) Title:</b> PHOSGENE WITH POOR CARBON TETRACHLORIDE CONTENT<br><b>(54) Bezeichnung:</b> TETRACHLORKOHLNSTOFFARMES PHOSGEN<br><b>(57) Abstract</b><br><p>The invention relates to a method for the production of phosgene having a carbon tetrachloride content of less than 150 ppm, especially for the production of polycarbonates and polyesters. According to said method, carbon monoxide is reacted with chlorine in the presence of elementary carbon at a temperature ranging from 30 to 80° C and a pressure ranging from 120 to 400 kPa, said temperature and pressure being measured directly behind the phosgene generator.</p> <b>(57) Zusammenfassung</b><br><p>In einem Verfahren zur Herstellung von Phosgen mit weniger als 150 ppm Tetrachlorkohlenstoff, insbesondere für die Herstellung von Polycarbonaten und Polyestern, wird Kohlenmonoxid mit Chlor in Gegenwart von elementarem Kohlenstoff bei einer Temperatur von 30 bis 80 °C und einem Druck von 120 bis 400 kPa, gemessen unmittelbar hinter dem Phosgenerator, umgesetzt.</p> |           |  |

### LEDIGLICH ZUR INFORMATION

Codes zur Identifizierung von PCT-Vertragsstaaten auf den Kopfbögen der Schriften, die internationale Anmeldungen gemäss dem PCT veröffentlichen.

|    |                              |    |                                      |    |  |    |                                   |
|----|------------------------------|----|--------------------------------------|----|--|----|-----------------------------------|
| AL | Albanien                     | ES | Spanien                              | LS | Lesotho  | SI | Slowenien                         |
| AM | Armenien                     | FI | Finnland                             | LT | Litauen  | SK | Slowakei                          |
| AT | Österreich                   | FR | Frankreich                           | LU | Luxemburg  | SN | Senegal                           |
| AU | Australien                   | GA | Gabun                                | LV | Letland  | SZ | Swasiland                         |
| AZ | Aserbaidshan                 | GB | Vereinigtes Königreich               | MC | Monaco   | TD | Tschad                            |
| BA | Bosnien-Herzegowina          | GE | Georgien                             | MD | Republik Moldau                                    | TG | Togo                              |
| BB | Barbados                     | GH | Ghana                                | MG | Madagaskar   | TJ | Tadschikistan                     |
| BE | Belgien                      | GN | Guinea                               | MK | Die ehemalige jugoslawische<br>Republik Mazedonien | TM | Turkmenistan                      |
| BF | Burkina Faso                 | GR | Griechenland                         | ML | Mali   | TR | Türkei                            |
| BG | Bulgarien                    | HU | Ungarn                               | MN | Mongolei   | TT | Trinidad und Tobago               |
| BJ | Benin                        | IE | Irland                               | MR | Mauretanien  | UA | Ukraine                           |
| BR | Brasilien                    | IL | Israel                               | MW | Malawi   | UG | Uganda                            |
| BY | Belarus                      | IS | Island                               | MX | Mexiko   | US | Vereinigte Staaten von<br>Amerika |
| CA | Kanada                       | IT | Italien                              | NE | Niger  | UZ | Usbekistan                        |
| CF | Zentralafrikanische Republik | JP | Japan                                | NL | Niederlande  | VN | Vietnam                           |
| CG | Kongo                        | KE | Kenia                                | NO | Norwegen   | YU | Jugoslawien                       |
| CH | Schweiz                      | KG | Kirgisistan                          | NZ | Neuseeland   | ZW | Zimbabwe                          |
| CI | Côte d'Ivoire                | KP | Demokratische Volksrepublik<br>Korea | PL | Polen  |    |                                   |
| CM | Kamerun                      | KR | Republik Korea                       | PT | Portugal   |    |                                   |
| CN | China                        | KZ | Kasachstan                           | RO | Rumänien   |    |                                   |
| CU | Kuba                         | LC | St. Lucia                            | RU | Russische Föderation                               |    |                                   |
| CZ | Tschechische Republik        | LI | Liechtenstein                        | SD | Sudan  |    |                                   |
| DE | Deutschland                  | LK | Sri Lanka                            | SE | Schweden   |    |                                   |
| DK | Dänemark                     | LR | Liberia                              | SG | Singapur   |    |                                   |
| EE | Estland                      |    |                                      |    |  |    |                                   |

**PCT**WELTORGANISATION FÜR GEISTIGES EIGENTUM  
Internationales BüroINTERNATIONALE ANMELDUNG VERÖFFENTLICHT NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE  
INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS (PCT)

|  |           |   |
|--|-----------|---|
| <b>(51) Internationale Patentklassifikation <sup>7</sup> :</b><br><b>C01B 31/28, C08G 64/22, 63/64</b>   | <b>A1</b> | <b>(11) Internationale Veröffentlichungsnummer:</b> <b>WO 00/24672</b><br><b>(43) Internationales Veröffentlichungsdatum:</b> <b>4. Mai 2000 (04.05.00)</b>   |
| <b>(21) Internationales Aktenzeichen:</b> PCT/EP99/07654<br><b>(22) Internationales Anmeldedatum:</b> 12. Oktober 1999 (12.10.99)<br><br><b>(30) Prioritätsdaten:</b><br>198 48 668.5      22. Oktober 1998 (22.10.98)      DE<br><br><b>(71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten ausser US):</b> BAYER AKTIENGESELLSCHAFT [DE/DE]; D-51368 Leverkusen (DE).<br><br><b>(72) Erfinder; und</b><br><b>(75) Erfinder/Anmelder (nur für US):</b> HEUSER, Jürgen [DE/DE]; Minkweg 29 a, D-47803 Krefeld (DE). KAUTH, Hermann [DE/DE]; Kolpingstrasse 34, D-47829 Krefeld (DE). KORDS, Christian [DE/DE]; Am Oberfeld 39, D-47829 Krefeld (DE).<br><br><b>(74) Gemeinsamer Vertreter:</b> BAYER AKTIENGESELLSCHAFT; D-51368 Leverkusen (DE).   |           | <b>(81) Bestimmungsstaaten:</b> AE, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, CA, CH, CN, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, EE, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, NO, NZ, PL, PT, RO, RU, SD, SE, SG, SI, SK, SL, TJ, TM, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VN, YU, ZA, ZW, ARIPO Patent (GH, GM, KE, LS, MW, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZW), eurasisches Patent (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), europäisches Patent (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE), OAPI Patent (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).<br><br><b>Veröffentlicht</b><br><i>Mit internationalem Recherchenbericht.</i> |
| <b>(54) Title:</b> PHOSGENE WITH POOR CARBON TETRACHLORIDE CONTENT<br><br><b>(54) Bezeichnung:</b> TETRACHLORKOHLLENSTOFFARMES PHOSGEN<br><br><b>(57) Abstract</b><br><br>The invention relates to a method for the production of phosgene having a carbon tetrachloride content of less than 150 ppm, especially for the production of polycarbonates and polyesters. According to said method, carbon monoxide is reacted with chlorine in the presence of elementary carbon at a temperature ranging from 30 to 80° C and a pressure ranging from 120 to 400 kPa, said temperature and pressure being measured directly behind the phosgene generator.<br><br><b>(57) Zusammenfassung</b><br><br>In einem Verfahren zur Herstellung von Phosgen mit weniger als 150 ppm Tetrachlorkohlenstoff, insbesondere für die Herstellung von Polycarbonaten und Polyestern, wird Kohlenmonoxid mit Chlor in Gegenwart von elementarem Kohlenstoff bei einer Temperatur von 30 bis 80 °C und einem Druck von 120 bis 400 kPa, gemessen unmittelbar hinter dem Phosgenergenerator, umgesetzt.<br><br><div style="text-align: center; margin-top: 100px;">Le A 32 990</div> |           |   |

# LEDIGLICH ZUR INFORMATION

Codes zur Identifizierung von PCT-Vertragsstaaten auf den Kopfbögen der Schriften, die internationale Anmeldungen gemäss dem PCT veröffentlichen.

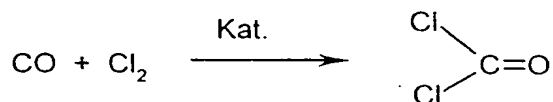
|    |                              |    |                                   |    |   |    |                                |
|----|------------------------------|----|-----------------------------------|----|---|----|--------------------------------|
| AL | Albanien                     | ES | Spanien                           | LS | Lesotho   | SI | Slowenien                      |
| AM | Armenien                     | FI | Finnland                          | LT | Litauen   | SK | Slowakei                       |
| AT | Österreich                   | FR | Frankreich                        | LU | Luxemburg                                       | SN | Senegal                        |
| AU | Australien                   | GA | Gabun                             | LV | Lettland  | SZ | Swasiland                      |
| AZ | Aserbaidshan                 | GB | Vereinigtes Königreich            | MC | Monaco  | TD | Tschad                         |
| BA | Bosnien-Herzegowina          | GE | Georgien                          | MD | Republik Moldau                                 | TG | Togo                           |
| BB | Barbados                     | GH | Ghana                             | MG | Madagaskar                                      | TJ | Tadschikistan                  |
| BE | Belgien                      | GN | Guinea                            | MK | Die ehemalige jugoslawische Republik Mazedonien | TM | Turkmenistan                   |
| BF | Burkina Faso                 | GR | Griechenland                      |    |   | TR | Türkei                         |
| BG | Bulgarien                    | HU | Ungarn                            | ML | Mali  | TT | Trinidad und Tobago            |
| BJ | Benin                        | IE | Irland                            | MN | Mongolei  | UA | Ukraine                        |
| BR | Brasilien                    | IL | Israel                            | MR | Mauretanien                                     | UG | Uganda                         |
| BY | Belarus                      | IS | Island                            | MW | Malawi  | US | Vereinigte Staaten von Amerika |
| CA | Kanada                       | IT | Italien                           | MX | Mexiko  |    |                                |
| CF | Zentralafrikanische Republik | JP | Japan                             | NE | Niger   | UZ | Usbekistan                     |
| CG | Kongo                        | KE | Kenia                             | NL | Niederlande                                     | VN | Vietnam                        |
| CH | Schweiz                      | KG | Kirgisistan                       | NO | Norwegen  | YU | Jugoslawien                    |
| CI | Côte d'Ivoire                | KP | Demokratische Volksrepublik Korea | NZ | Neuseeland                                      | ZW | Zimbabwe                       |
| CM | Kamerun                      |    |                                   | PL | Polen   |    |                                |
| CN | China                        | KR | Republik Korea                    | PT | Portugal  |    |                                |
| CU | Kuba                         | KZ | Kasachstan                        | RO | Rumänien  |    |                                |
| CZ | Tschechische Republik        | LC | St. Lucia                         | RU | Russische Föderation                            |    |                                |
| DE | Deutschland                  | LI | Liechtenstein                     | SD | Sudan   |    |                                |
| DK | Dänemark                     | LK | Sri Lanka                         | SE | Schweden  |    |                                |
| EE | Estland                      | LR | Liberia                           | SG | Singapur  |    |                                |

### Tetrachlorkohlenstoffarmes Phosgen

Die Erfindung betrifft tetrachlorkohlenstoffarmes Phosgen, ein Verfahren zu dessen  
5 Herstellung sowie dessen Verwendung zur Herstellung von Polycarbonaten und  
Polyestercarbonaten.

Phosgen ist ein wichtiges Ausgangsmaterial zur Herstellung von Zwischenprodukten  
und Endprodukten in vielen Zweigen der Chemie, insbesondere bei der Herstellung  
10 von Isocyanaten, Polycarbonatkunststoffen und Chlorameisensäureestern. Reines  
Phosgen ist ein farbloses, hydrolyseempfindliches, toxisches Gas, das unter Normal-  
druck bei  $-127,8^{\circ}\text{C}$  siedet und bei  $7,56^{\circ}\text{C}$  zu einer farblosen Flüssigkeit kondensiert.

Es ist bekannt, Phosgen durch katalytische Vereinigung von Kohlenmonoxid (CO)  
15 und elementarem Chlor ( $\text{Cl}_2$ ) herzustellen:



Als Katalysator wird meist Aktivkohle verwendet. Die Reaktion ist exotherm und der  
20 Umsatz nahezu vollständig. Es ist üblich, die Reaktion in mit Katalysator befüllten  
Rohrreaktoren aus Normalstahl oder Edelstahl durchzuführen. Zum Abführen der  
Reaktionswärme werden die Rohre in der Regel von außen gekühlt. Je nach Verfah-  
rensbedingungen enthält das nach diesem Verfahren hergestellte Phosgen mehr oder  
weniger große Mengen an Tetrachlorkohlenstoff ( $\text{CCl}_4$ ) als Verunreinigung. Dieses  
25 wird durch unerwünschte Nebenreaktionen wie Disproportionierungsreaktionen,  
Überchlorierung des Kohlenmonoxids, Chlorierung des Kohlenstoffkatalysators und  
Chlorierung von Methan ( $\text{CH}_4$ ) gebildet. Der Verunreinigungsgrad des nach gängi-  
gen Verfahren hergestellten Phosgens durch Tetrachlorkohlenstoff liegt üblicher-  
weise in einem Bereich von 250 bis 2000 ppm.

Die Bildung von Tetrachlorkohlenstoff als Nebenprodukt bei der Phosgenherstellung ist in vielerlei Hinsicht problematisch. So müssen wegen der Umweltunverträglichkeit von chlorierten Kohlenwasserstoffen kostspielige Vorkehrungen getroffen werden, die sicherstellen, daß der bei der Reaktion entstehende Tetrachlorkohlenstoff nicht an die Außenwelt abgegeben wird. Ferner wirken sich selbst geringe Gehalte an Tetrachlorkohlenstoff nachteilig auf einige, unter Verwendung von Phosgen hergestellte Produkte, insbesondere Kunststoffe, aus. Für die Herstellung von Polycarbonatkunststoffen wird beispielsweise hochreines Phosgen mit einem Tetrachlorkohlenstoffgehalt von höchstens 250 ppm benötigt, um Verfärbungen in dem normalerweise farblosen und durchsichtigen Endprodukt zu vermeiden.

In der JP 88-156040 wird ein Verfahren zur Herstellung von tetrachlorkohlenstoffarmem Phosgen durch Reaktion von Kohlenmonoxid mit Chlor über Aktivkohle bei 350°C beschrieben, in dem der Aktivkohlekatalysator vor der Reaktion durch Säurebehandlung von Verunreinigungen durch Übergangsmetalle, Bor, Aluminium und Silicium befreit wird. Das nach diesem Verfahren hergestellte Phosgen weist einen Tetrachlorkohlenstoffgehalt von 150 ppm auf. Nachteilig an diesem Verfahren ist jedoch die aufwendige Vorbehandlung des Aktivkohlekatalysators.

In der JP 80-014044 wird ein Reaktor zur Umsetzung von Chlor und Kohlenmonoxid zu Phosgen vorgeschlagen, in dem der Aktivkohlekatalysator an den Reaktorwänden mit Hilfe eines Metallnetzes angebracht ist. Durch diese Anordnung wird ein Überhitzen des Katalysatorbetts vermieden. Das in einem solchen Reaktor bei Temperaturen von 200 bis 250°C und einer Durchflußgeschwindigkeit von 600 bis 1200 l/h hergestellte Phosgen weist einen Tetrachlorkohlenstoffgehalt von 250 bis 400 ppm auf. Nachteilig an diesem Verfahren ist jedoch, daß eine Neubefüllung des Reaktors mit Aktivkohle bei Abfall der Aktivität im Vergleich zu herkömmlichen Rohrreaktoren erheblich mehr Aufwand erfordert.



Der Erfindung liegt die Aufgabe zugrunde, Phosgen mit einem noch geringeren Tetrachlorkohlenstoffgehalt bereitzustellen.

5 Gelöst wird diese Aufgabe durch ein Phosgen, das weniger als 150 ppm Tetrachlorkohlenstoff enthält. Gegenstand der Erfindung ist ferner ein Verfahren zur Herstellung eines solchen Phosgens, in dem man Kohlenmonoxid mit Chlor in Gegenwart von elementarem Kohlenstoff bei einer Temperatur von 30 bis 80°C und einem Druck von 120 bis 400 kPa<sub>abs.</sub>, gemessen unmittelbar hinter dem Phosgenera-

10

Vorteilhafterweise ist es zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens möglich, übliche Rohrreaktoren aus Normalstahl oder Edelstahl durchgeführt werden, dessen Rohre mit dem Kohlenstoffkatalysator gefüllt sind. Der Rohrreaktor kann kontinuierlich oder diskontinuierlich betrieben werden.

15

Kohlenmonoxid und Chlor werden zu etwa gleichen Teilen, vorzugsweise bei Raumtemperatur, in den Reaktor eingeführt. Um sicherzustellen, daß das gesamte Chlor umgesetzt wird, kann ein geringer Überschuß von Kohlenmonoxid verwendet werden. Vorzugsweise werden die beiden Reaktanden vor Eintritt in den Reaktor in

20

einer geeigneten Mischvorrichtung, beispielsweise in einem statischen Mischer, vermischt.

Ein weiterer Vorteil des erfindungsgemäßen Verfahrens ist es, daß keine spezielle Vorbereitung des Katalysators erforderlich ist.

25

Der aus dem Reaktor austretende Gasstrom soll eine Temperatur von 70 bis 80°C, gemessen unmittelbar hinter dem Phosgenera-

30

nicht überschreiten. Vorzugsweise beträgt die Temperatur des aus dem Reaktor austretenden Gasstroms im erfindungsgemäßen Verfahren 40 bis 70°C. Ein Überschreiten dieser Temperaturen wird mit Hilfe von entsprechenden Kühlvorrichtungen verhindert, welche die bei der

Reaktion frei werdende Reaktionswärme abführen und ein Überhitzen des Katalysators verhindern.

Als Kohlenstoffkatalysator wird bevorzugt Aktivkohle eingesetzt. Vorzugsweise wird als Katalysator körnige Aktivkohle mit einem Korndurchmesser von 3 bis 4 mm verwendet. Die Porenoberfläche der Aktivkohle beträgt vorzugsweise etwa 1000 m<sup>2</sup>/g. Das Schüttgewicht der verwendeten Aktivkohle beträgt vorzugsweise etwa 450 g/l.

Der Druck gemessen unmittelbar hinter dem Phosgenreaktor beträgt vorzugsweise höchstens 300 kPa<sub>abs.</sub>. Dadurch wird sichergestellt, daß Phosgen im Reaktor nicht kondensieren kann.

Das nach dem erfindungsgemäßen Verfahren hergestellte, am Kopf des Reaktors austretende Phosgen wird vorzugsweise bei Temperaturen von -10 bis -20°C kondensiert. Infolge seines geringen Tetrachlorkohlenstoffgehalts von weniger als 150 ppm kann es unmittelbar ohne weitere Reinigung zur Herstellung von Polymeren mit Carbonatbindung, insbesondere von Polycarbonaten oder Polyestercarbonaten, verwendet werden.

Das zur Umsetzung verwendete Chlor kann nach üblichen technischen Verfahren wie Chloralkali- oder Chlorwasserstoffelektrolyse hergestellt werden und sollte möglichst rein sein. Besonders geeignet ist Chlor mit einem Reinheitsgrad von mehr als 98 %. Vorzugsweise wird flüssiges Chlor aus einem Lagerbehälter verwendet, das in einem beheizten Vergaser verdampft und anschließend in einem Nachverdampfer von eventuell mitgerissenem, flüssigem Chlor befreit wird.

Das für die Umsetzung verwendete Kohlenmonoxid kann nach üblichen Verfahren, beispielsweise aus Erdgas/Naphtha in einer Synthesegasanlage oder aus Koks durch Blasen mit Sauerstoff hergestellt werden. Es hat sich als besonders vorteilhaft erwiesen, wenn das Kohlenmonoxid einen Methangehalt von weniger als 50 ppm aufweist.

Im folgenden wird die Erfindung durch Ausführungsbeispiele weiter erläutert.

**Beispiel 1**

500 Nm<sup>3</sup>/h Kohlenmonoxid mit einer Reinheit von 97,5 % und einem Methangehalt von 50 ppm, gemessen durch eine On-Line-IR-Messung (Methode 2301-0207901-91D), und 480 Nm<sup>3</sup>/h Chlor mit einer Reinheit von 99,9 % wurden bei Raumtemperatur gemischt und einem mit Aktivkohle (Korndurchmesser etwa 4 mm, Porenoberfläche etwa 1000 m<sup>2</sup>/g, Schüttgewicht etwa 450 g/l) gefüllten Phosgengenerator zugeführt. Der Generator wurde gekühlt, so daß die Temperatur des gebildeten Phosgens, gemessen unmittelbar nach Verlassen des Generators, 55°C betrug. Der Druck, gemessen unmittelbar nach Verlassen des Generators, betrug 80 kPa<sub>u</sub> (180 kPa<sub>abs</sub>). Das hergestellte Phosgen wies einen Tetrachlorkohlenstoffgehalt von 100 ppm auf.

**Beispiel 2**

500 Nm<sup>3</sup>/h Kohlenmonoxid mit einer Reinheit von 98 % und einem Methangehalt von 50 ppm, gemessen durch eine On-Line-IR-Messung (Methode 2301-0207901-91D) und 480 Nm<sup>3</sup>/h Chlor wurden bei Raumtemperatur gemischt und einem mit Aktivkohle (Korndurchmesser etwa 4 mm, Porenoberfläche etwa 1000 m<sup>2</sup>/g, Schüttgewicht etwa 450 g/l) gefüllten Phosgengenerator zugeführt. Der Generator wurde gekühlt, so daß die Temperatur des gebildeten Phosgens, gemessen unmittelbar nach Verlassen des Generators, 40°C betrug. Der Druck, gemessen unmittelbar nach Verlassen des Generators, betrug 40 kPa<sub>u</sub> (140 kPa<sub>abs</sub>). Das hergestellte Phosgen wies einen Tetrachlorkohlenstoffgehalt von 80 ppm auf.

**Vergleichsbeispiel**

500 Nm<sup>3</sup>/h Kohlenmonoxid mit einer Reinheit von 98 %, einem Methangehalt von 10 ppm und 485 Nm<sup>3</sup>/h Chlor wurden bei Raumtemperatur gemischt und einem Phosgengenerator wie in den Beispielen 1 und 2 zugeführt. Der Generator wurde gekühlt, so daß die Temperatur des gebildeten Phosgens, gemessen unmittelbar nach

Verlassen des Generators, 85°C betrug. Der Druck, gemessen ebenfalls unmittelbar nach Verlassen des Generators, betrug 600 kPa<sub>g</sub> (700 kPa<sub>abs</sub>). Das hergestellte Phosgen wies einen Tetrachlorkohlenstoffgehalt von 290 ppm auf.

Patentansprüche

1. Tetrachlorkohlenstoffarmes Phosgen, enthaltend weniger als 150 ppm Tetra-  
chlorkohlenstoff.  
5
2. Verfahren zur Herstellung von tetrachlorkohlenstoff-armem Phosgen durch  
Umsetzen von Kohlenmonoxid mit Chlor in Gegenwart von elementarem  
Kohlenstoff in einem Reaktor, dadurch gekennzeichnet, daß der aus dem  
Reaktor austretende Gasstrom eine Temperatur von 30 bis 80°C aufweist und  
10 unter einem Druck von 120 bis 400 kPa<sub>abs.</sub>, gemessen unmittelbar hinter dem  
Phosgengenerator, steht.
3. Verfahren gemäß Anspruch 2, dadurch gekennzeichnet, daß der aus dem  
Reaktor austretende Gasstrom eine Temperatur von 40 bis 70°C aufweist.  
15
4. Verfahren gemäß Anspruch 2 oder 3, dadurch gekennzeichnet, daß der aus  
dem Reaktor austretende Gasstrom unter einem Druck von höchstens  
300 kPa<sub>abs.</sub> steht.
- 20 5. Verfahren gemäß einem der Ansprüche 2 bis 4, dadurch gekennzeichnet, daß  
der Methangehalt des Kohlenmonoxids höchstens 50 ppm beträgt.
6. Verwendung des tetrachlorkohlenstoffarmen Phosgens nach einem der  
Ansprüche 1 bis 5 zur Herstellung von Polycarbonaten und Polyester-carbo-  
naten.  
25

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**